



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000053207	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/00489	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 20.01.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 23.01.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C5/333		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		
<p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.</p>		
<p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Bescheids</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priorität</p> <p>III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags  10.06.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  18.06.2004	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter  O'Sullivan, P Tel. +31 70 340-4511 	

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-5 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-8 eingegangen am 12.03.2004 mit Schreiben vom 11.03.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,       Seiten:
- ☐ Ansprüche,       Nr.:
- ☐ Zeichnungen,       Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |  |
|--------------------------------|--|
| 1. Feststellung                |  |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-8<br>Nein: Ansprüche   |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-8<br>Nein: Ansprüche   |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-8<br>Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: US-A-3 847 968

D2: US-A-3 417 156

**Neuheit (Art 33(2) PCT)**

In D1 wird es offenbart, dass das Verhältnis von Wasserdampf zu Ethylbenzol mindestens 6:1 sein sollte (Spalte 3, Zeilen 9-18), bevorzugt 10:1 bis 13:1. Ein Verhältnis von Wasserdampf zu Ethylbenzol von 5,95 bis 1:1 ist demnach nicht offenbart.

Der Gegenstand der Ansprüche 1-8 erfüllt somit das Erfordernis von Art 33(2) PCT gegenüber D1.

D2 beschreibt ebenfalls ein Verfahren zur Herstellung von Styrol aus Ethylbenzol. Nach dem letzten Katalysatorbett wird die gasförmige Kohlenwasserstofffraktion abgetrennt und verbrannt (Spalte 2, Zeile 69 - Spalte 3, Zeile 2). Diese Verbrennungsgase werden mit mindestens einem Ausgangsstrom aus einem Katalysatorbett gemischt und dem folgenden Katalysatorbett zugeführt (Spalte 2, Zeilen 63-66). Eine Beimischung von Methan vor dem Kontakt mit dem Katalysator ist folglich nicht offenbart. In D2 liegt das Verhältnis von Wasserdampf zu Ethylbenzol zwischen 6:1 und 120:1 (einem "pound" bis zwanzig "pound" Wasserdampf pro "pound" Ethylbenzol), insbesondere bei 17:1 (Spalte 5, Zeile 30-35). Daher ist die vorliegende Erfindung neu gegenüber D2.

**Erfinderische Tätigkeit (Art 33(3) PCT)**

D1 stellt sich zur Aufgabe, ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Styrol bereitzustellen, das insbesondere mit reduziertem Wasserdampf auskommen soll. Durch diese Reduzierung kann das Verfahren kleiner dimensioniert werden, ferner könnten Kosten und Ausrüstung gesenkt werden. Die Erfindung von D1 ist, dass sich dieses Verhältnis reduzieren lässt, wobei ein Mindestverhältnis von 6:1 vorliegen muss. Der vorteilhafte Bereich liegt zwischen 10:1 und 13:1.

Überraschend gegenüber D1 zeigt die vorliegende Erfindung, dass sich das Verhältnis Wasserdampf zu Ethylbenzol weiter reduzieren lässt. In der vorliegenden Erfindung, lässt sich Styrol auch bei einem Verhältnis von kleiner 6:1 bei hohem Ethylbenzolumsatz und hoher Raum-Zeitausbeute herstellen.

Da die vorliegende Erfindung eine verbesserte Lösung bei einer identischen Aufgabenstellung gegenüber D1 aufweist, wird die Erfindung einem Fachmann durch D1 nicht nahegelegt.

Der Gegenstand der Ansprüche 1-8 erfüllt somit das Erfordernis von Art 33(3) PCT.

## Neue Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen durch Umsetzung von alkylaromatischen Verbindungen in Gegenwart von Wasserdampf und Erdgas oder Methan an einem geeigneten Katalysator bei einer Temperatur von 400 bis 800°C und einem Druck von 0,01 bis 10 bar, dadurch gekennzeichnet, dass das Molverhältnis Wasserdampf zu alkylaromatischer Verbindung 5,95:1 bis 1:1 und das Molverhältnis Methan zu alkylaromatischer Verbindung 0,1:1 bis 8:1 beträgt, wobei das Methan vor dem Kontakt mit dem Katalysator beigemischt wird.
2. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Molverhältnis Wasserdampf zu alkylaromatischer Verbindung 5,9:1 bis 2,5:1 beträgt.
3. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Molverhältnis Methan zu alkylaromatischer Verbindung 0,2:1 bis 6:1 beträgt.
4. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen nach einem der Ansprüche 1, 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, dass man die Umsetzung zwei- bis sechsstufig durchführt.
5. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen nach einem der Ansprüche 1, 2, 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass man als alkylaromatische Verbindung Isopropylbenzol, Ethylbenzol, 1,1-Diphenylethan oder eine Alkylpyridinverbindung einsetzt.
6. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen nach einem der Ansprüche 1, 2, 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass man als Kohlenwasserstoffverbindung Ethylbenzol einsetzt.
7. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen nach einem der Ansprüche 1, 2, 3, 4, 5 oder 6, dadurch gekennzeichnet, dass das Erdgas mindestens 90 Vol.-% Methan enthält.

7

8. Verfahren zur Herstellung von alkenylaromatischen Verbindungen nach einem der Ansprüche 1, 2, 3, 4, 5, 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, dass man die Umsetzung in Radialstromreaktoren durchführt.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

Rec'd PCT/PTO 20 JUL 2004

10/501879

PCT/EP2003/000489

PATENT COOPERATION TREATY



Translation

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY  
(Chapter II of the Patent Cooperation Treaty)

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 0000053207	FOR FURTHER ACTION See Form PCT/IPEA/416	
International application No. PCT/EP2003/000489	International filing date (day/month/year) 20 January 2003 (20.01.2003)	Priority date (day/month/year) 23 January 2002 (23.01.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 5/333		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This report is the international preliminary examination report, established by this International Preliminary Examining Authority under Article 35 and transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.

3. This report is also accompanied by ANNEXES, comprising:

a. ☒ (sent to the applicant and to the International Bureau) a total of 2 sheets, as follows:

☒ sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis of this report and/or sheets containing rectifications authorized by this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions).

☐ sheets which supersede earlier sheets, but which this Authority considers contain an amendment that goes beyond the disclosure in the international application as filed, as indicated in item 4 of Box No. I and the Supplemental Box.

b. ☐ (sent to the International Bureau only) a total of (indicate type and number of electronic carrier(s)) \_\_\_\_\_, containing a sequence listing and/or tables related thereto, in computer readable form only, as indicated in the Supplemental Box Relating to Sequence Listing (see Section 802 of the Administrative Instructions).

4. This report contains indications relating to the following items:

☒ Box No. I Basis of the report

☐ Box No. II Priority

☐ Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability

☐ Box No. IV Lack of unity of invention

☒ Box No. V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

☐ Box No. VI Certain documents cited

☐ Box No. VII Certain defects in the international application

☐ Box No. VIII Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 10 June 2003 (10.06.2003)	Date of completion of this report 18 June 2004 (18.06.2004)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/EP2003/000489

## Box No. I Basis of the report

1. With regard to the **language**, this report is based on the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.

- ☐ This report is based on translations from the original language into the following language \_\_\_\_\_, which is language of a translation furnished for the purpose of:
- ☐ international search (under Rules 12.3 and 23.1(b))
  - ☐ publication of the international application (under Rule 12.4)
  - ☐ international preliminary examination (under Rules 55.2 and/or 55.3)

2. With regard to the **elements** of the international application, this report is based on *(replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report)*:

- ☐ The international application as originally filed/furnished
- ☒ the description:
- pages \_\_\_\_\_ 1-5 \_\_\_\_\_, as originally filed/furnished
- pages\* \_\_\_\_\_ 1-8 \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_ 11 March 2004 (11.03.2004)
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:
- pages \_\_\_\_\_, as originally filed/furnished
- pages\* \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement) under Article 19
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:
- pages \_\_\_\_\_, as originally filed/furnished
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- ☐ a sequence listing and/or any related table(s) – see Supplemental Box Relating to Sequence Listing.

3. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/figs \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing (*specify*): \_\_\_\_\_
- ☐ any table(s) related to sequence listing (*specify*): \_\_\_\_\_

4. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments annexed to this report and listed below had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/figs \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing (*specify*): \_\_\_\_\_
- ☐ any table(s) related to sequence listing (*specify*): \_\_\_\_\_

\* If item 4 applies, some or all of those sheets may be marked "superseded."

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/00489

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

Reference is made to the following documents:

D1: US-A-3 847 968

D2: US-A-3 417 156

#### Novelty (PCT Article 33(2))

In document D1 the ratio of steam to ethylbenzene is supposed to be at least 6:1 (column 3, lines 9 to 18), and preferably between 10:1 and 13:1. Hence D1 does not disclose a steam to ethylbenzene ratio of between 5.95 and 1:1.

The subject matter of claims 1 to 8 therefore meets the requirement of PCT Article 33(2) in relation to D1.

Document D2 also describes a method for producing styrene from ethylbenzene. After the last catalyst bed the gaseous hydrocarbon fraction is separated and burned (column 2, line 69 to column 3, line 2). The combustion gases are mixed with at least one effluent stream from a catalyst bed and fed to the next catalyst bed (column 2, lines 63 to 66). Hence there is no addition of methane before contact with the catalyst. In D2 the ratio of steam to ethylbenzene is between 6:1 and 120:1 (between one and twenty pounds of steam per pound of

ethylbenzene), in particular 17:1 (column 5, lines 30 to 35). The present invention is therefore novel over D2.

**Inventive step (PCT Article 33(3))**

The problem addressed by D1 is that of providing an improved method for producing styrene, in particular a method that uses a smaller quantity of steam. This reduction in quantity allows the method to be carried out on a smaller scale, and also reduces the cost and amount of equipment needed. The invention according to D1 lies in the reduction of the ratio to a minimum of 6:1. The optimum ratio is between 10:1 and 13:1.

The present invention allows a further reduction in the ratio of steam to ethylbenzene, which is surprising in the light of D1. In the present invention styrene can even be produced at a ratio of less than 6:1 with a high turnover of ethylbenzene and a high space-time yield.

The present invention addresses exactly the same problem as D1 and offers a better solution, and is therefore not obvious to a person skilled in the art on the basis of D1.

The subject matter of claims 1 to 8 therefore meets the requirement of PCT Article 33(3).